513 熱化学水素製造法 IS プロセスの研究開発 (II) —硫酸分解器の開発—

Research and development of hydrogen production system by thermochemical water-splitting IS process (II) —Development of sulfuric acid decomposer—

○ 大田裕之 (原研)、正 野口弘喜 (原研)、寺田敦彦 (原研)、正 久保真治 (原研)、坂場成昭 (原研)、小貫薫 (原研)、正 日野竜太郎 (原研)

Hiroyuki OTA, Hiroki NOGUCHI, Atsuhiko TERADA, Shinji KUBO, Nariaki SAKABA, Kaoru ONUKI and Ryutaro HINO

Japan Atomic Energy Research Institute

360 Narita-cho Oarai-machi Higashi Ibaraki-gun, Ibaraki-ken 311-1394

Japan Atomic Energy Research Institute has been conducting R&D on HTGRs and hydrogen production method focusing on thermo-chemical IS process. Sulfuric acid decomposer is one of the key components of IS process, which decomposes H_2SO_4 into SO_3 and H_2O while evaporating sulfuric acid at high temperature conditions up to 500°C . Development of a sulfuric acid decomposer that features multi-hole-block type heat exchanger made of SiC ceramics is in progress and a pilot-scale mock-up model (block: 0.25m in diameter and 1.5m in height) has been test-fabricated. Also, two kinds of sulfuric acid circulation test loops were constructed to examine heat transfer characteristics of boiling sulfuric acid and the material compatibility for pipes, valves, pumps etc in the concerned process environments.

Key Words: Hydrogen Production, IS Process, Sulfuric Acid, Decomposer, Heat Exchanger, Ceramics, SiC

1. はじめに

日本原子力研究所 (原研) では、高温ガス炉による水素製造技術の開発を目指して、高温ガス炉を熱源として水素を製造する熱化学 IS 法の研究開発を進めている。硫酸分解器はヘリウムガス加熱により、2MPa、 500°C で濃硫酸を蒸発させ三酸化硫黄と水に分解する装置であり、IS プロセスの硫黄循環プロセスの重要機器である。本装置には高温高強度特性、良好な硫酸耐食性及びヘリウムガス熱交換特性が要求される。これに対し、原研では、沸騰硫酸環境において優れた耐食性を示す SiC セラミックスを適用したブロック型熱交換器構造を特徴とする硫酸分解器の開発を進めており、その成立性検討の一環として、モックアップ試験体の試作試験、高温シール特性の検証試験等を行った。また、硫酸の伝熱特性データの補完整備、硫酸分解器廻りの配管等のプロセス要素の健全性の検証等を目的とする硫酸流動・機器健全性試験装置を製作した。ここでは、その概要を報告する。

2. 基本構造

硫酸分解器は IS プロセスの硫黄循環システムの硫酸蒸発・分解装置として適用するもので、高温ヘリウムガス (He) により約 90wt%濃度の硫酸を沸騰蒸発させ、同時に、硫酸蒸気を三酸化硫黄ガスと水蒸気に分解させる。パイロットプラント規模 (水素製造量 $30 \text{ Nm}^3/\text{hr}$ 規模) の硫酸分解器に要求される主な仕様を Table 1 に示す。硫酸分解器の熱交換部の硫酸接触部は高温でかつ厳しい腐食条件に晒されることから、原研では、当該環境における各種材料の耐食性等の知見をもとに、熱交換部に SiC セラミック製の伝熱ブロックを用いる硫酸分解器の検討を進めてきた。分解器の構造の概要を Fig. 1 に示す。本硫酸分解器は熱交換部に硫酸

Table 1 Design conditions for sulfuric acid decomposer for the pilot plant

Items	Conditions
Thermal Rating	82.7 kW
He Inlet / Outlet Temp.	710 / 535°C
Process Inlet / Outlet Temp.	435 / 460°C
He Pressure	4 MPaG
Process Pressure	2 MPaG
He Flow Rate	0.091 kg/s
Process Flow Rate	0.066 kg/s

Process flow: 90wt% sulfuric acid

に対する良好な耐食性、かつ、高強度及び高伝熱特性を有する SiC セラミックを用いた伝熱ブロックを用いることを

Fig. 1 Conceptual drawing of sulfuric-acid decomposer for the pilot plant

特徴とし、伝熱ブロックに加工された径15mmの孔に硫酸(32孔)とHe(38孔)を並行対向流として通過させ熱交換させる。この伝熱ブロックは外径250mm、長さ1500mmの寸法で上下で二分割されており、ブロック間は金のガスケットでシールする。このシール性を維持する目的で、伝熱ブロックを金属製のタイロッドで軸方向に締付けてシール部の適正な面圧を確保するとともに、熱膨張量の大きく異なるセラミックスと金属間の運転時の熱膨張差を皿バネの撓みで吸収する。

3. 適用性評価

硫酸分解器のISパイロットプラントへの適用性を見通すため、構造機能成立性及び伝熱特性を評価する試験を行っている。前者のため、SiC製伝熱ブロックの熱及び圧力荷重に対する発生応力の評価を行うとともに、Fig. 2に示すパイロットプラント級の硫酸分解器実寸モックアップ試験体の試作、並びに、高温シール性試験を行った結果、その構造機能成立性に見通しを得た。

また後者においては、硫酸の伝熱特性が未知であることから、特に硫酸の沸騰伝熱特性を取得すること、加えて、硫酸分解器に付随する機器・配管及び計器等の健全性を評価することを目的とした硫酸流動・機器健全性試験装置を製作した。本装置の概要をFig. 3に、組立て中の全体写真をFig. 4に示す。本装置は2.5L/minの硫酸沸騰伝熱試験ループ及び20L/minの高温硫酸機器試験ループから構成される。前者は硫酸分解器の伝熱管1本を模擬した沸騰伝熱試験体を有するもので、300℃までの硫酸の沸騰状況が可視化でき、かつ沸騰伝熱相関式を評価することを目的とした装置である。後者はポンプ、弁、配管の構造・機能健全性を硫酸実流試験によって得ることを目的とするもので、加熱器、ガラスコーティング配管、冷却器及びポンプから構成される。本ループでは硫酸は全領域で液相であり、加熱器の出口では300℃まで昇温することができる。予備試験では、硫酸の沸騰を目視により確認した。

4. おわりに

熱化学法ISプロセスによる水素製造において、最も腐食環境の厳しい環境に設置される硫酸分解器のプラント適用性を評価するため、原研では構造機能成立性について解析及びモックアップ試作体の試作等を行い、その見通しを得た。一方、伝熱特性については、硫酸流動・機器健全性試験装置を製作し、主に沸騰伝熱性能等を評価する試験に着手した。現在、試運転を行っているところであり、硫酸の液相、気相と沸騰領域の伝熱特性及び沸騰時の安定不安定流動特性の取得、並びに硫酸沸騰の可視化に向けた機器調整を実施している。

なお、3項に述べた適用性評価の内容は、電源開発促進対策特別会計法に基づく文部科学省からの受託事業として、日本原子力研究所が実施した平成16年度「核熱利用システム技術開発」の成果である。

Fig. 2 Outer view of full-scale mockup model of sulfuric-acid decomposer internals

Fig. 3 Flow diagram of sulfuric acid test loops

Fig. 4 Outer view of sulfuric acid test loops (under construction)